

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT
AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

09/786163

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 002483	WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5	
Internationales Aktenzeichen PCT/DE 99/ 02956	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 10/09/1999	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 11/09/1998
Anmelder INSTITUTE FUR ANGEWANDTE CHEMIE et al.		

Dieser internationale Recherchenbericht wurde von der Internationalen Recherchenbehörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Internationalen Büro übermittelt.

Dieser internationale Recherchenbericht umfaßt insgesamt 3 Blätter.

☒ Darüber hinaus liegt ihm jeweils eine Kopie der in diesem Bericht genannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.

1. Grundlage des Berichts

- a. Hinsichtlich der **Sprache** ist die internationale Recherche auf der Grundlage der internationalen Anmeldung in der Sprache durchgeführt worden, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

☐ Die internationale Recherche ist auf der Grundlage einer bei der Behörde eingereichten Übersetzung der internationalen Anmeldung (Regel 23.1 b)) durchgeführt worden.

- b. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale Recherche auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das

☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.

☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.

☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfaßten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

2. ☐ Bestimmte Ansprüche haben sich als nicht recherchierbar erwiesen (siehe Feld I).

3. ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung (siehe Feld II).

4. Hinsichtlich der **Bezeichnung der Erfindung**

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt:

5. Hinsichtlich der **Zusammenfassung**

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut nach Regel 38.2b) in der in Feld III angegebenen Fassung von der Behörde festgesetzt. Der Anmelder kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.

6. Folgende Abbildung der **Zeichnungen** ist mit der Zusammenfassung zu veröffentlichen: Abb. Nr. 1

☒ wie vom Anmelder vorgeschlagen

☐ weil der Anmelder selbst keine Abbildung vorgeschlagen hat.

☐ weil diese Abbildung die Erfindung besser kennzeichnet.

☐ keine der Abb.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/DE 99/02956

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 7 B01J37/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
IPC 7 B01J

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	MITTASCH A: "EARLY STUDIES OF MULTICOMPONENT CATALYSTS" ADVANCES IN CATALYSIS, US, SAN DIEGO, CA, vol. 2, 1950, pages 81-104, XP000874209	1
A	* insbesondere Seite 102, Zeile 3-9 *	7,8,10
A	--- DE 196 32 779 A (HOECHST AG) 19 February 1998 (1998-02-19) abstract column 2, line 38 -column 3, line 13	1,2, 10-14
A	--- STEMMER W P C: "Rapid evolution of a protein in vitro by DNA shuffling" NATURE, 4 August 1994 (1994-08-04), XP002082182 the whole document --- -/--	2,3

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

- *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- *E* earlier document but published on or after the international filing date
- *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- *T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- *X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- *Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- *&* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

19 September 2000

Date of mailing of the international search report

22.09.00

Name and mailing address of the ISA

Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Veefkind, V

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/DE 99/02956

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No. .
A	US 5 684 711 A (AGRAFIOTIS DIMITRIS K ET AL) 4 November 1997 (1997-11-04) abstract	2,3
A	--- WO 94 24314 A (KAUFFMAN STUART A ;REBEK JULIUS JR (US)) 27 October 1994 (1994-10-27) abstract; claims 25-27	1-3
A	--- SIGMAN M S ET AL: "SCHIFF BASE CATALYSTS FOR THE ASYMMETRIC STRECKER REACTION IDENTIFIED AND OPTIMIZED FROM PARALLEL SYNTHETIC LIBRARIES" JOURNAL OF THE AMERICAN CHEMICAL SOCIETY,US,AMERICAN CHEMICAL SOCIETY, WASHINGTON, DC, vol. 120, 1998, pages 4901-4902, XP000857794 ISSN: 0002-7863 the whole document	1
A	--- WO 98 03521 A (BEEK JOHANNES A M VAN ;TURNER HOWARD (US); BOUSSIE THOMAS (US); G0) 29 January 1998 (1998-01-29) claims 1,2,7 page 12, line 13 -page 13, line 23 page 16, line 21 -page 18, line 3 page 39, line 17 -page 45, line 15	1
A	--- W P STEMMER ET AL: "Searching sequence space" BIO/TECHNOLOGY,US,NATURE PUBLISHING CO. NEW YORK, vol. 13, 1 June 1995 (1995-06-01), pages 549-553, XP002095510 ISSN: 0733-222X the whole document	2
A	--- WARD ET AL.: "Combinatorial library diversity: probability assessment of library populations" NUCLEIC ACIDS RESEARCH, vol. 26, no. 4, February 1998 (1998-02), pages 879-886, XP002147467 the whole document -----	2

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/DE 99/02956

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
DE 19632779 A	19-02-1998	AU 4379697 A WO 9807026 A EP 1012598 A	06-03-1998 19-02-1998 28-06-2000
US 5684711 A	04-11-1997	US 5574656 A US 5463564 A US 5901069 A AU 688598 B AU 3628095 A AU 710152 B AU 7188698 A CA 2199264 A EP 0781436 A HU 77914 A IL 115292 A IL 125017 A JP 10505832 T WO 9608781 A	12-11-1996 31-10-1995 04-05-1999 12-03-1998 29-03-1996 16-09-1999 30-07-1998 21-03-1996 02-07-1997 28-10-1998 20-06-1999 14-07-1999 09-06-1998 21-03-1996
WO 9424314 A	27-10-1994	AU 6815894 A AU 8002098 A CA 2160457 A EP 0695368 A JP 9500007 T	08-11-1994 22-10-1998 27-10-1994 07-02-1996 07-01-1997
WO 9803521 A	29-01-1998	AU 3741897 A EP 0923590 A EP 0985678 A EP 0983983 A EP 0978499 A JP 11514012 T AU 4673497 A AU 4749397 A AU 4812097 A AU 4902497 A EP 1019947 A EP 0934515 A EP 1021711 A WO 9815969 A WO 9815813 A WO 9815501 A WO 9815805 A US 5959297 A	10-02-1998 23-06-1999 15-03-2000 08-03-2000 09-02-2000 30-11-1999 05-05-1998 05-05-1998 05-05-1998 05-05-1998 19-07-2000 11-08-1999 26-07-2000 16-04-1998 16-04-1998 16-04-1998 16-04-1998 28-09-1999

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Assistant Commissioner for Patents
United States Patent and Trademark
Office
Box PCT
Washington, D.C.20231
ETATS-UNIS D'AMERIQUE

in its capacity as elected Office

Date of mailing (day/month/year) 09 May 2000 (09.05.00)	
International application No. PCT/DE99/02956	Applicant's or agent's file reference 002483
International filing date (day/month/year) 10 September 1999 (10.09.99)	Priority date (day/month/year) 11 September 1998 (11.09.98)
Applicant WOLF, Dorit et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:
06 April 2000 (06.04.00)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election ☒ was

☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Authorized officer Diana Nissen Telephone No.: (41-22) 338.83.38
---	--

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference 002483	FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/DE99/02956	International filing date (day/month/year) 10 September 1999 (10.09.99)	Priority date (day/month/year) 11 September 1998 (11.09.98)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC B01J 37/00		
Applicant INSTITUT FÜR ANGEWANDTE CHEMIE BERLIN-ADLERSHOF E.V.		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.

2. This REPORT consists of a total of 8 sheets, including this cover sheet.



This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).

These annexes consist of a total of 3 sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I ☒ Basis of the report
- II ☐ Priority
- III ☐ Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV ☐ Lack of unity of invention
- V ☒ Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI ☐ Certain documents cited
- VII ☐ Certain defects in the international application
- VIII ☐ Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 06 April 2000 (06.04.00)	Date of completion of this report 13 December 2000 (13.12.2000)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/DE99/02956

I. Basis of the report

1. This report has been drawn on the basis of (*Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to the report since they do not contain amendments.*):

☐ the international application as originally filed.

☒ the description, pages 2-25, as originally filed,
pages _____, filed with the demand,
pages 1, filed with the letter of 01 December 2000 (01.12.2000),
pages _____, filed with the letter of _____.

☒ the claims, Nos. 2(in part), 3-15, as originally filed,
Nos. _____, as amended under Article 19,
Nos. _____, filed with the demand,
Nos. 1,2(in part), filed with the letter of 01 December 2000 (01.12.2000),
Nos. _____, filed with the letter of _____.

☒ the drawings, sheets/fig 1/1, as originally filed,
sheets/fig _____, filed with the demand,
sheets/fig _____, filed with the letter of _____,
sheets/fig _____, filed with the letter of _____.

2. The amendments have resulted in the cancellation of:

☐ the description, pages _____

☐ the claims, Nos. _____

☐ the drawings, sheets/fig _____

3. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).

4. Additional observations, if necessary:

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

1. Statement

Novelty (N)	Claims	1-15	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	2-14	YES
	Claims	1, 15	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-15	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations

1. This report refers to the following documents; the numbering will be retained throughout the proceedings:

D1: MITTASCH A: 'EARLY STUDIES OF MULTICOMPONENT CATALYSTS' ADVANCES IN CATALYSIS, US, SAN DIEGO, CA, Vol. 2, 1950, pages 81-104, XP000874209

D3: EP-A-0 589 384

D4: DE-A-196 32 779.

2. Claim 1

- 2.1 The method as per Claim 1 meets the requirement of PCT Article 33(2) in conjunction with PCT Rule 64.1.

In his article (D1), Alwin Mittasch describes the development of inorganic multicomponent catalysts for ammonia synthesis. For this purpose, since iron oxide had proved to be a promising catalyst, different iron oxide catalysts were tested with a variety of promoters (page 102, first paragraph). Following on from this, it is normal that the best catalysts would form the starting point for further tests. In the absence of a theoretical concept, the

choice of promoters forms part of an empirical search (page 101, last paragraph to page 102, line 3) and is more or less subject to the arbitrary selection of the scientist. Given the number of tests (20 000) listed and the number of substances (3000) tested, it is implicit that more than three generations were produced.

D1 does not however show that the individual catalyst components or substance amounts of the catalyst components, or catalyst components and substance amounts are arbitrarily or randomly restructured by means of crossing and mutation, using the stochastic method and selecting from random generators, die and/or draws.

D3 discloses an iterative method for experimentally determining parameter values for an optimum process result, in which the set parameters for each series of tests, proceeding from the result values of a first series of tests based on random values of the parameter, are established using an optimisation strategy based on the genetic evolution algorithm using the result values of each preceding series of tests (Claim 1). Reference is made, *inter alia*, to the composition of the catalysts as an example of the use of the genetic algorithm as per the invention (page 4, lines 4-14). Since catalysts are always present in the form of specific chemical compounds, this feature is not suitable for delimiting the claimed method over D3. Nor is the feature whereby the individual catalyst components or substance amounts of the catalyst components, or catalyst components and substance amounts are arbitrarily or randomly restructured by means of

crossing and mutation, using the stochastic method and selecting from random generators, die and/or draws, suitable for establishing novelty over D3, since in D3 also these components or substance amounts are likewise restructured by means of crossing and mutation using random numbers, albeit using a bit string. However, since D3 does not relate to inorganic or metallo-organic solid catalysts, the novelty of this feature is established.

- 2.2. The method as per Claim 1 does not meet the requirements of PCT Article 33(3).

The selection of inorganic or metallo-organic solid catalysts is an obvious measure to a person skilled in the art, since a number of catalysts are associated with this group. Consequently, no inventive step can be attributed to the method according to Claim 1 in relation to D3.

Furthermore, it is not clear what technical problem is solved by the use of crossing and mutation using the stochastic method and selecting from random generators, die and/or draws, in contrast with crossing and mutation based on the intuition of the researcher. The presence of an inventive step in relation to D1 is therefore also questionable.

3. Claim 15

The subject matter of dependent Claim 15 is not inventive in relation to a combination of D1 or D3 with D4 (PCT Article 33(3)).

The advantages that can be achieved by the parallel reaction, in particular the gain in time, are familiar to a person skilled in the art (see D4: Claims 1-2, 9, 13 and 19; Figure 1; and column 1, lines 31-38). It would therefore have been obvious for a person skilled in the art to transfer this feature to the methods of D1 or D3 in order to achieve the aforementioned advantage.

4. Claims 2-14

The method according to Claims 2-14 is novel and inventive in relation to the available prior art (PCT Article 33(2) and (3)).

4.1 It should first be noted that a number of features have been added to Claim 2 (Claims 3-14 refer back to Claim 2), for example:

- the composition of the catalyst is restricted to inorganic components;
- i) the number n_1 of the first generation lies between 5 and 100 000;
- ii) activity and/or selectivity is tested in one or more parallel reactors;
- iii) a number n_2 of 1-50% of the best catalysts n_1 are selected;
- iv) y_2 catalysts of the second generation are formed by substituting the catalyst components with a set probability lying between two of the n_2 selected catalysts, and/or the substance amounts are varied with a specific probability;
- v) n_3 catalysts which have the best results from the two preceding generations are reselected; n_3 is 1-50% of n_1 ;
- vi) in an iterative process, a particular generation

y_{n+1} is formed from the preceding generation y_n , the best catalysts from all the preceding generations (1 to n) being selected until the activity and/or selectivity is not or no longer significantly higher than preceding generations in the arithmetical mean.

- 4.2 Since D1 does not disclose features ii) to vi), novelty is established over D1.
- 4.3 The features listed under iv) to vi) correspond to a method known as a genetic algorithm in the prior art, but this was not previously used for developing inorganic solid catalysts.

D3 shows that the claimed method is not the only conceivable and therefore obvious method for imparting the genetic algorithm on multi-component systems.

In the specific embodiment of the method in D3, the number of tests in the initial test series is associated with a corresponding number of bit strings which are subdivided into a number of segments corresponding to the number of parameters. The results obtained from the first group of tests are subject to crossover, inversion and mutation with a graded degree of probability, the bit string being substituted, reversed or randomly substituted accordingly. The generation thus obtained is reconverted into real values and tested. The method is intended, for example, for nutrient solutions for bacterial strains. D3 therefore clearly differs from the method according to Claim 2 in that the crossing and mutation is generated on the basis of

bit strings.

Consequently, even if a person skilled in the art were to have transferred the method disclosed in D3 to inorganic solid catalysts, he would not have arrived at the method specified in Claim 2.

The claimed method is clearly simpler than that of D3 given that the parameters are first generated on bit strings that can then be resubjected to the genetic algorithm.

Since Claims 3-14 all refer back to Claim 2, an inventive step is also established for these claims.

6. There are no doubts as to the industrial applicability of the claimed method (PCT Article 33(4)).

09 / 7 8 6 1 6 3

**VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM
GEBIET DES PATENTWESENS**

PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

REC'D 18 JUL 2000

WIPO PCT

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 002483	WEITERES VORGEHEN <small>siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsbericht (Formblatt PCT/IPEA/416)</small>	
Internationales Aktenzeichen PCT/DE99/02956	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 10/09/1999	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag) 11/09/1998
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK B01J37/00		
Anmelder INSTITUTE FUR ANGEWANDTE CHEMIE et al.		

1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationale vorläufigen Prüfung beauftragte Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 4 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.

☐ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

I ☒ Grundlage des Berichts

II ☐ Priorität

III ☒ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit

IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung

V ☐ Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderische Tätigkeit und der gewerbliche Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen

VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung

VIII ☐ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags 06/04/2000	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 14.07.2000
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde: <div style="display: flex; align-items: center;"> <div> Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465 </div> </div>	Bevollmächtigter Bediensteter Jourdan, A Tel. Nr. +49 89 2399 8349 <div style="text-align: right;"> </div>

I. Grundlage des Berichts

1. Dieser Bericht wurde erstellt auf der Grundlage (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten.*):

Beschreibung, Seiten:

1-25 ursprüngliche Fassung

Patentansprüche, Nr.:

1-15 ursprüngliche Fassung

Zeichnungen, Blätter:

1/1 ursprüngliche Fassung

2. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung, Seiten:
- ☐ Ansprüche, Nr.:
- ☐ Zeichnungen, Blatt:

3. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)):

4. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

III. Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit

Folgende Teile der Anmeldung wurden nicht daraufhin geprüft, ob die beanspruchte Erfindung als neu, auf erfinderischer Tätigkeit beruhend (nicht offensichtlich) und gewerblich anwendbar anzusehen ist:

- ☒ die gesamte internationale Anmeldung.
- ☐ Ansprüche Nr. .

Begründung:

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/DE99/02956

- ☐ Die gesamte internationale Anmeldung, bzw. die obengenannten Ansprüche Nr. beziehen sich auf den nachstehenden Gegenstand, für den keine internationale vorläufige Prüfung durchgeführt werden braucht (*genaue Angaben*):

- ☐ Die Beschreibung, die Ansprüche oder die Zeichnungen (*machen Sie hierzu nachstehend genaue Angaben*) oder die obengenannten Ansprüche Nr. sind so unklar, daß kein sinnvolles Gutachten erstellt werden konnte (*genaue Angaben*):

- ☐ Die Ansprüche bzw. die obengenannten Ansprüche Nr. sind so unzureichend durch die Beschreibung gestützt, daß kein sinnvolles Gutachten erstellt werden konnte.

- ☒ Für die obengenannten Ansprüche Nr. 1-15 wurde kein internationaler Recherchenbericht erstellt.

III.

Es kann keine Prüfung der Erfordernisse des Artikels 33 PCT, wie Neuheit oder erfinderische Tätigkeit, durchgeführt werden, da kein internationaler Recherchebericht erstellt wurde.

09/786163
5210

09/786163

47

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

REC'D 15 DEC 2000

WIPO PCT

PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 002483	WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsbericht (Formblatt PCT/IPEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/DE99/02956	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 10/09/1999	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag) 11/09/1998
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK B01J37/00		
Anmelder INSTITUTE FUR ANGEWANDTE CHEMIE et al.		



- Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationale vorläufigen Prüfung beauftragte Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
- Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 8 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.
 - ☒ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt 3 Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Berichts
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderische Tätigkeit und der gewerbliche Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☐ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

**CORRECTED
VERSION**

Datum der Einreichung des Antrags 06/04/2000	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 13.12.2000
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter Jourdan, A Tel. Nr. +49 89 2399 8349 

I. Grundlage des Berichts

1. Dieser Bericht wurde erstellt auf der Grundlage (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten.*):

Beschreibung, Seiten:

2-25 ursprüngliche Fassung

1 eingegangen am 01/12/2000 mit Schreiben vom 01/12/2000

Patentansprüche, Nr.:

2 (Teil),3-15 ursprüngliche Fassung

1,2 (Teil) eingegangen am 01/12/2000 mit Schreiben vom 01/12/2000

Zeichnungen, Blätter:

1/1 ursprüngliche Fassung

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen Behörde in der Sprache: , zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, dass das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/DE99/02956

- ☐ Die Erklärung, dass die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung, Seiten:
☐ Ansprüche, Nr.:
☐ Zeichnungen, Blatt:

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen).

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche	1-15
	Nein: Ansprüche	
Erfinderische Tätigkeit (ET)	Ja: Ansprüche	2-14
	Nein: Ansprüche	1,15
Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)	Ja: Ansprüche	1-15
	Nein: Ansprüche	

2. Unterlagen und Erklärungen
siehe Beiblatt

V.

1. Auf die folgenden Druckschriften wird in diesem Bericht bezug genommen; die Nummerierung wird im Verfahren beibehalten.

D1: MITTASCH A: 'EARLY STUDIES OF MULTICOMPONENT CATALYSTS' ADVANCES IN CATALYSIS,US,SAN DIEGO, CA, Bd. 2, 1950, Seiten 81-104, XP000874209

D3: EP-A-0 589 384

D4: DE-A-196 32 779

2. Anspruch 1

- 2.1 Das Verfahren gemäß Anspruch 1 erfüllt das Erfordernis des Artikels 33(2) PCT in Verbindung mit den Bestimmungen der Regel 64.1 PCT.

Alwin Mittasch beschreibt in seinem Artikel (D1) die Entwicklung von anorganischen Mehrstoffkatalysatoren für die Ammoniksynthese. Dazu wurden, nachdem sich Eisenoxid sich als erfolgversprechender Katalysator gezeigt hatte, verschiedene Eisenoxid-Katalysatoren mit einer Vielzahl von Promotoren getestet (Seite 102, 1. Absatz). Danach ist es üblich, daß jeweils die besten Katalysatoren die Ausgangsbasis für weitere Versuche bilden. Die Auswahl an Promotoren ist dabei in Abwesenheit eines theoretischen Konzepts eine empirische Suche (Seite 101 letzter Absatz bis Seite 102, Zeile 3) und unterliegt mehr oder weniger der willkürlichen Auswahl des Wissenschaftlers. Aufgrund der genannten Anzahl an Versuchen (20 000) und getesteten Stoffen (3000) ist es implizit, daß mehr als drei Generationen erzeugt wurden.

Aus D1 geht jedoch nicht hervor, daß die einzelnen Katalysatorkomponenten oder Stoffmengen der Katalysatorkomponenten oder Katalysatorkomponenten und Stoffmengen mittels Kreuzung und Mutation, ausgewählt unter den stochastischen Verfahren Einsatz von Zufallsgeneratoren, Würfeln und/oder Ziehungen willkürlich oder zufällig neu strukturiert werden.

D3 offenbart ein iteratives Verfahren zur experimentellen Ermittlung von Parameterwerten für ein optimales Prozeßergebnis, indem die

Parametervorgaben jeder Versuchsreihe -ausgehend von den Ergebniswerten einer ersten, durch Zufallswerte der Parameter festgelegten Versuchsreihe- durch Anwendung einer dem genetischen Evolutions-Algorithmus folgenden Optimierungsstrategie unter Zugrundelegung der Ergebniswerte der jeweils vorangehenden Versuchsreihe festgelegt werden (Anspruch 1). Als Beispiel für den erfindungsgemäßen Einsatz des genetischen Algorithmus wird u.a. die Zusammensetzung von Katalysatoren angeführt. (Seite 4, Zeilen 4-14). Da Katalysatoren immer in Form bestimmter chemischer Verbindungen vorliegen ist dieses Merkmal nicht geeignet das beanspruchte Verfahren gegenüber D3 abzugrenzen. Ebenso ist das Merkmal, dass die einzelnen Katalysatorkomponenten oder Stoffmengen der Katalysatorkomponenten oder Katalysatorkomponenten und Stoffmengen mittels Kreuzung und Mutation, ausgewählt unter den stochastischen Verfahren Einsatz von Zufallsgeneratoren, Würfeln und/oder Ziehungen willkürlich oder zufällig neu strukturiert werden, nicht geeignet die Neuheit gegenüber D3 herzustellen, da in D3 diese Komponenten, bzw. Stoffmengen ebenfalls mittels Kreuzung und Mutation unter Einsatz von Zufallszahlen, wenn auch über den Umweg eines Bitstrings, neu strukturiert werden. Da D3 jedoch nicht auf anorganische oder metallorganische Feststoffkatalysatoren gerichtet ist, ist die Neuheit durch dieses Merkmal gegeben.

2.2 Das Verfahren gemäß Anspruch 1 erfüllt nicht die Voraussetzungen des Artikels 33(3) PCT.

Die Auswahl von anorganischen oder metallorganischen Feststoffkatalysatoren ist eine Maßnahme, die für den Fachmann naheliegend ist, da eine Vielzahl von Katalysatoren dieser Gruppe zuzuordnen sind. Daher kann dem Verfahren nach Anspruch 1 keine erfinderische Tätigkeit gegenüber D3 zugemessen werden.

Weiterhin ist nicht erkennbar, welche Aufgabe durch den Einsatz von Kreuzung und Mutation ausgewählt unter den stochastischen Verfahren Einsatz von Zufallsgeneratoren, Würfeln und/oder Ziehungen, gegenüber einer Kreuzung und Mutation durch Intuition des Forschers erreicht wird. Daher ist auch das Vorliegen einer erfinderischen Tätigkeit gegenüber D1 fraglich.

3. Anspruch 15

Der Gegenstand des abhängigen Anspruchs 15 ist im Hinblick auf eine Kombination von D1 oder D3 mit D4 nicht erfinderisch (Artikel 33(3) PCT).

Die durch die parallele Reaktionsführung erzielbaren Vorteile, insbesondere der Zeitgewinn, sind dem Fachmann geläufig. (siehe D4: Ansprüche 1-2,9,13,19, Figur 1, Spalte 1, Zeilen 31-38) Daher ist es naheliegend, daß der Fachmann es auch auf die Verfahren von D1 oder D3 übertragen hätte, um den genannten Vorteil zu erzielen.

4. Ansprüche 2-14

Das Verfahren der Ansprüche 2-14 ist neu gegenüber dem verfügbaren Stand der Technik und erfinderisch (Artikel 33(2) und (3) PCT).

- 4.1 Zunächst ist festzustellen, dass in Anspruch 2 (die Ansprüche 3-14 sind rückbezogen auf Anspruch 2) eine Vielzahl von Merkmalen hinzugefügt werden, u.a.:
- die Zusammensetzung des Katalysators beschränkt sich auf anorganische Bestandteile
 - i) die Anzahl n_1 der ersten Generation liegt zwischen 5 und 100 000
 - ii) die Testung der Aktivität und/oder Selektivität erfolgt in einem oder in mehreren parallel geschalteten Reaktoren
 - iii) es wird eine Anzahl n_2 von 1-50% der besten Katalysatoren n_1 ausgewählt
 - iv) es werden y_2 Katalysatoren der 2. Generation gebildet, indem die Katalysatorkomponenten mit einer festgelegten Wahrscheinlichkeit zwischen jeweils 2 der n_2 ausgewählten Katalysatoren ausgetauscht und/oder es werden die Stoffmengenanteile mit einer bestimmten Wahrscheinlichkeit variiert
 - v) es werden wiederum n_3 Katalysatoren ausgewählt, die die besten Ergebnisse aus den beiden vorhergehenden Generationen aufweisen; n_3 ist 1-50% von n_1
 - vi) in einem iterativen Verfahren wird so jeweils eine Generation y_{n+1} aus der Vorgängergeneration y_n gebildet, wobei die jeweils besten Katalysatoren aus allen

vorhergehenden Generationen 1 bis n ausgewählt werden bis die Aktivität und/oder Selektivität gegenüber den vorangegangenen Generationen im arithmetischen Mittel nicht oder nicht mehr signifikant erhöht ist.

- 4.2 Da D1 diese Merkmale ii) bis vi) nicht offenbart, ist die Neuheit gegenüber D1 gegeben.
- 4.3 Die unter iv) bis vi) genannten Merkmale entsprechen einem Verfahren, daß im Stand der Technik als genetischer Algorithmus bekannt ist, bisher aber nicht die für Entwicklung anorganische Feststoffkatalysatoren vorbeschrieben wurde.

Aus D3 geht hervor, daß das beanspruchte Verfahren keineswegs das einzige denkbare und damit unmittelbar naheliegende ist, um den genetischen Algorithmus auf Mehrkomponentensysteme zu übertragen.

In der konkreten Ausgestaltung des Verfahrens in D3 wird der Anzahl der Versuche der primären Versuchsreihe eine entsprechende Anzahl Bitstrings zugeordnet, wobei eine der Anzahl der Parameter entsprechende Anzahl Segmente aufgenommen wird. Die aus der ersten Gruppe der Versuche erhaltenen Ergebnisse werden mit abgestufter Wahrscheinlichkeit einem Crossover, einer Inversion und Mutation unterzogen, indem der Bitstring entsprechend ausgetauscht, umgekehrt oder zufallsausgetauscht wird. Die so erhaltene Generation wird wieder in Realwerte umgesetzt und getestet. Das Verfahren wird am Beispiel von Nährlösungen für Bakterienstämme dargestellt. D3 unterscheidet sich insofern deutlich von dem Verfahren nach Anspruch 2, da die Kreuzung und Mutation auf der Ebene der Bitstrings erzeugt wird.

Selbst wenn also der Fachmann das in D3 offenbarte Verfahren auf anorganische Feststoffkatalysatoren übertragen hätte, wäre er nicht zu dem in Anspruch 2 festgesetzten Verfahren gekommen.

Das beanspruchte Verfahren ist deutlich einfacher als der in D3 gefundene Ansatz, in dem die Parameter zunächst auf Bitstrings abgebildet werden, die dann

wiederum dem genetischen Algorithmus unterworfen werden können.

Da die Ansprüche 3-14 alle auf Anspruch 2 rückbezogen sind, ist auch für diese Ansprüche eine erfinderische Tätigkeit gegeben.

6. Es bestehen keine Zweifel an der gewerblichen Anwendbarkeit des beanspruchten Verfahrens (Artikel 33(4) PCT).

PCT/DE99/02966 (002483)

1.12.2000

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur schnellen und wirtschaftlichen Entwicklung von Feststoffkatalysatoren für heterogen katalysierte Reaktionsabläufe, wie sie bei Prozessen in der chemischen Produktion und in der Raffinerietechnik sowie bei der Umwelttechnik auftreten, durch ihre parallelisierte Ausprüfung nach neuen evolutionären Methoden.

Die Neuentwicklung oder Verbesserung heterogener anorganischer Feststoffkatalysatoren beruht auf empirischem Expertenwissen und Grundlagenwissen. Obwohl über die Wirkungsweise einzelner anorganischer Komponenten bzw. Verbindungen bei der Katalyse bestimmter Reaktionsteilschritte ein umfassendes Grundlagenwissen besteht, das für die Katalysatorentwicklung eine entscheidende Bedeutung hat, kann in der Praxis auf absehbare Zeit nicht darauf verzichtet werden, eine große Zahl von Katalysatoren, die aus verschiedenen aktiven Komponenten bzw. Phasen bestehen, herzustellen und auf ihre katalytische Wirkungsweise für die betrachtete Reaktion auszuprüfen.

Für die Durchführung einer vorgegebenen Reaktion wird es in der Regel mehrere katalytisch aktive Phasen geben, die in geeigneter Weise und in einem empirisch zu ermittelnden Verhältnis der aktiven Komponenten hergestellt und dabei zusammengebracht werden. Die Kenntnis der physikalischen, physikalisch-chemischen und katalytischen Eigenschaften von Festkörpern bildet eine rationale Basis für die Auswahl katalytisch wirksamer Materialien bei der Katalysatorentwicklung und -verbesserung. Selbst wenn im Idealfall die richtigen Einzelkomponenten bzw. Einzelphasen des Katalysators ausgewählt werden können, ist es erforderlich, das geeignete Massenverhältnis und Präparationsverfahren zu ermitteln.

Aus Advances in Catalysis 2(1950)81-104 ist die empirische Suche von Promotoren für anorganische Mehrstoffkatalysatoren bekannt. In der EP-A-0589384 wird ein iteratives Verfahren zur Ermittlung von Parameterwerten beschrieben, bei dem die Optimierungsstrategie darin besteht, der Versuchsanzahl jeder Ebene Bitstrings zuzuordnen, diese mit abgestufter Wahrscheinlichkeit nacheinander auszutauschen und dann in Realwerte umzuwandeln.

PCT/DE99/02966 (002483)

1.12.2000

Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung aktiver oder selektiver Feststoff-Katalysatoren aus anorganischen oder metallorganischen Stoffen oder Gemischen davon durch Auswahl einer bestimmten Anzahl von chemisch oder mengenmäßig oder chemisch und mengenmäßig unterschiedlich zusammengesetzten Feststoff-Katalysatoren und Ermittlung von wesentlichen Katalysatoreigenschaften, dadurch gekennzeichnet, daß für eine bestimmte katalytische Reaktion bei den hinsichtlich Aktivität oder Selektivität oder Aktivität und Selektivität besten Katalysatoren der 1. Generation in Form bestimmter chemischer Verbindungen die einzelnen Katalysatorkomponenten oder Stoffmengen der Katalysatorkomponenten oder Katalysatorkomponenten und Stoffmengen mittels Kreuzung und Mutation, ausgewählt unter den stochastischen Verfahren Einsatz von Zufallsgeneratoren, Würfeln und/oder Ziehungen willkürlich oder zufällig neu strukturiert werden, die Aktivität oder Selektivität oder Aktivität und Selektivität der erhaltenen Katalysatoren der 2. Generation ermittelt wird, von den besten Katalysatoren der 2. Generation wiederum ein Anteil hinsichtlich der einzelnen Katalysatorkomponenten oder Stoffmengen der Katalysatorkomponenten oder Katalysatorkomponenten und Stoffmengen mittels der genannten stochastischen Verfahren willkürlich oder zufällig neu strukturiert wird, die Aktivität oder Selektivität oder Aktivität und Selektivität der erhaltenen Katalysatoren der 3. Generation ermittelt wird, und diese Schritte der Neustrukturierung aus den besten Katalysatoren aller Generationen und die Eigenschaftsermittlung bis zum Erhalt eines oder mehrerer Katalysatoren mit für die spezifische katalytische Reaktion gewünschten Eigenschaften fortgesetzt werden.

2. Verfahren zur Herstellung aktiver oder selektiver Feststoff-Katalysatoren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß (a) für eine katalytische Reaktion eine Anzahl n_1 von Feststoff-Katalysatoren hergestellt werden, die in Form von Verbindungen der Formel

$$(A_{a_1}^I \dots A_{a_i}^i) \cdot (B_{b_1}^I \dots B_{b_j}^j) \cdot (D_{d_1}^I \dots D_{d_k}^k) \cdot (T_{t_1}^I \dots T_{t_l}^l) \cdot O_p \quad (I)$$

bestehen,

stoff-Katalysatoren der 1. und 2. Generation aufweisen, ausgewählt werden, wobei die Anzahl n_3 1 bis 50 % der Zahl n_1 entspricht;

(g) die in der Anzahl n_3 Katalysatoren enthaltenen Katalysator-komponenten mit einer festgelegten Wahrscheinlichkeit W , die sich für jede der Komponenten $A^1 \dots A^i$, $B^1 \dots B^j$, $D^1 \dots D^k$ und $T^1 \dots T^l$ aus den entsprechenden Gleichungen

$$W_A = \frac{1}{i \cdot n_3} \cdot 100\%, W_B = \frac{1}{j \cdot n_3} \cdot 100\%, W_D = \frac{1}{k \cdot n_3} \cdot 100\%, W_T = \frac{1}{l \cdot n_3} \cdot 100\%$$

ergibt, zwischen jeweils 2 mit einer Wahrscheinlichkeit

$$W_{Kat} = \frac{1}{n_3} \cdot 100\%$$

aus der Menge n_3 ausgewählten Katalysatoren ausgetauscht werden oder daß die Stoffmengen $a_1 \dots a_i$, $b_1 \dots b_j$, $d_1 \dots d_k$ und $t_1 \dots t_l$ der Katalysatorkomponenten $A^1 \dots A^i$, $B^1 \dots B^j$, $D^1 \dots D^k$ und $T^1 \dots T^l$ bei einigen der mit der Wahrscheinlichkeit

$$W_{Kat} = \frac{1}{n_3} \cdot 100\%$$

ausgewählten Katalysatoren variiert werden, indem neue Werte für die Stoffmengenanteile $a_1 \dots a_i$, $b_1 \dots b_j$, $d_1 \dots d_k$ und $t_1 \dots t_l$ innerhalb der unter (a) definierten Grenzen festgelegt werden, oder daß Austausch und Variierung durchgeführt werden;

auf diese Weise werden neue Katalysatoren der allgemeinen Formel (I) mit der unter (a) genannten Bedeutung von A , B , D , T , a, b, d, t und p in einer Anzahl y_3 hergestellt, die die 3. Generation von Katalysatoren bilden;

(h) die Aktivität oder Selektivität oder Aktivität und Selektivität der nach (g) hergestellten y_3 neuen Katalysatoren der 3. Generation für die gleiche spezifische Reaktion wie unter (b) in einem oder mehreren Reaktoren ermittelt wird;

(i) eine Zahl von n_{n+1} Feststoff-Katalysatoren der 1. bis n -ten Generation, die die höchsten Aktivitäten für die katalytische Umsetzung oder die höchsten Selektivitäten für das gewünschte Produkt und Produktgemisch oder Aktivität und Selektivität aus allen Feststoff-Katalysatoren aufweisen, ausgewählt werden, wobei die Anzahl n_{n+1} 1 bis 50 % der Zahl n_1 entspricht;

(j) die in der Anzahl n_{n+1} Katalysatoren enthaltenen Katalysator-